

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 58-112073

(43)Date of publication of application : 04.07.1983

(51)Int.CI.

B05D 7/14
// C09D 3/81

(21)Application number : 56-214438

(71)Applicant : DAINIPPON TORYO CO LTD

(22)Date of filing : 25.12.1981

(72)Inventor : SAKURABA TOSHIHIKO
AKAGISHI SHINICHIROU
NAGAO YASUO
HARADA MASARU

(54) COATING METHOD FOR REPAIRING AUTOMOBILE

(57)Abstract:

PURPOSE: To improve the finish of repairing, in repairing the damaged part of a metallic paint film on an automobile, by applying urethane clear paint having specified composition to the part to be repaired and then lap-applying two-pack type urethane enamel paint during setting to touch.

CONSTITUTION: After the damaged part of a metallic paint film on an automobile is underbedded, urethane clear paint comprising acryl polyol resin (20W 45wt% styrene, 10W25wt% a hydroxyl group-contg. acrylic monomer and 30W 45wt% acylic ester) having average molecular weight of 5,000W50,000 and a polyisocyanate compound (prepared by mixing a derivative of hexmaethylene diisocyanate and a derivative of isophorone diisocyanate at a ratio of 50/50W 10/90) with the proviso that of the number of NCO groups/the number of OH groups=0.6W1.5 is applied to the entire surface of the part to be repaired and its vicinity. During setting to touch, two-pack liquid type urethane enamel paint is lap-applied and dried. In this way, repairing work producing an excellent result is performed within a short time.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

⑨ 日本国特許庁 (JP)
 ⑩ 公開特許公報 (A)

⑪ 特許出願公開
 昭58-112073

⑫ Int. Cl.
 B 05 D 7/14
 // C 09 D 3/81

識別記号

厅内整理番号
 7048-4F
 6516-4J

⑬ 公開 昭和58年(1983)7月4日
 発明の数 1
 審査請求 未請求

(全 7 頁)

④自動車補修塗装方法

⑤特 願 昭56-214438

⑥出 願 昭56(1981)12月25日

⑦発明者 桜庭寿彦
 豊中市新千里南町3丁目8番A
 5-303

⑧発明者 赤岸晋一郎
 福岡市中央区浄水通1-2

⑨発明者 長尾安雄

伊丹市野間字黒土392-2

⑩発明者 原田賢

生駒市有里町162-1

⑪出願人 大日本塗料株式会社
 大阪市此花区西九条6丁目1番
 124号

⑫代理人 弁理士 中村稔 外4名

明細書

1.発明の名称 自動車補修塗装方法

2.特許請求の範囲

自動車の補修塗装方法において、
 旧塗膜処理及び下地処理をした後補修部全面及
 び補修部周辺を

- (a) スチレン 20~45重量%
- (b) ヒドロキシ基含有アクリル系单量体
 --- 10~25重量%、及び
- (c) アクリル酸エステル、メタクリル酸エス
 テル、マレイン酸モノエステル、マレイン
 酸ジエステル、フマル酸モノエステルある
 いはフマル酸ジエステル（但しエステルは
 炭素数1~4のアルキル基を含有する）---

----- 30~55重量%

よりなる数平均分子量5,000~50,000
 のアクリルポリオール樹脂及びヘキサメチレンジ
 イソシアネート誘導体とイソホロジジイソシアネ
 ート誘導体が重量比で50/50~10/90上
 りなるポリイソシアネート化合物とからなり、か

つ前記ポリイソシアネート化合物のイソシアネー
 ト基とアクリルポリオール樹脂の水酸基の比が
 NCO基数/OH基数 = 0.6~1.5の範囲に
 あるウレタン樹脂形成成分を10~90重量%の
 比度で有機溶剤に溶解してなるウレタンクリヤー
 塗料を塗布し、

該塗料を少なくとも指触乾燥させた後補修部全
 面に2液型エナメル塗料を塗り重ね、ついで
 乾燥させることを特徴とする、自動車補修塗装
 方法。

FP04-0349
-00W0-NC
05.1.25
SEARCH REPORT

5発明の詳細な説明

本発明は自動車ペイントの補修塗装方法に関するものである。

自動車ペイントの補修塗装は、補修部及びその周辺を素地調整、旧塗膜の研磨、ヒズミ修正、脱脂、ペテ付け、研磨、プライマーサーフェーサー塗装、研磨等の旧塗膜処理及び下地処理をした後、上塗り塗装を施す方法が行なわれている。

従来より上塗り塗料としてメタリックカラー、ソリッドカラーの塗料が使用されている。しかし、研磨処理は通常サンドペーパーを用いて行なわれているため、ペーパーケイズ部分に補修塗装部よりもメタリック塗料が焼け込み、ペーパーケイズ目に沿つて広がる現象が生じ、上塗り色が欠損していない箇所との境界面の仕上がりが悪くなるという欠点があつた。そのため、メタリック塗料を補修部だけでなく補修部周辺にも塗装したり、あるいはメタリック塗料を塗装する前にラフカーリヤーあるいは2液型ウレタンクリヤー塗料を塗装する手筋がとられていた。

本発明は、上記の如きによる光沢の低下等のない、すなわち均一で高光沢の補修塗膜を得る自動車補修塗装方法を提供することを目的とするものである。

即ち、本発明は旧塗膜処理及び下地処理をした後補修部全面及び補修部周辺を

(a) ステレン……………20～45重量%
b) ヒアロキシ基含有アクリル系単量体……

……………10～25重量%

(c) アクリル酸エステル、メタクリル酸エス
テル、マレイン酸モノエステル、マレイン
酸ジエステル、フマル酸モノエステルある
いはフマル酸ジエステル（但しエステルは
炭素数1～4のアルキル基を含有する）…

……………30～55重量%

よりなる数平均分子量5,000～50,000のアクリルポリオール樹脂及びヘキサメチレンジイソシアネート誘導体とイソホロシジイソシアネート誘導体が重量比で50/50～10/90よりなるポリイソシアネート化合物とからなり、かつ前記ポリイソシアネート化合物のイソシアネート

特開昭58-112073(2)

しかしながらメタリック塗料を補修部周辺にまで塗装する場合には、それだけメタリック塗料の無駄となり、一方メタリック塗料を補修塗装する前にラフカーリヤー塗料を塗装する場合には、その塗料中の強溶剤により下地塗膜が溶解、膨潤し、チヂミ現象が生じたりするという欠点があつた。また、2液型ウレタンクリヤー塗料を使用する場合には従来の2液型ウレタンクリヤー塗料では乾燥が遅く、乾燥不充分のクリヤー塗膜上にメタリック塗料を塗装するとメタルの振動によりメタルムラが生じやすくなるので、メタリック塗料を塗装するまでの間隔を長くせざるを得ないという塗装作業性上の問題があつた。またソリッドカラーの塗料を上塗り塗料として使用した場合においても前記の如きペーパーケイズへの塗料のすい込み現象がみられ光沢の良い塗膜が得られず、そのため上塗り塗料の塗装回数を増す必要がある等の欠点があつた。

本発明は前述の如き従来技術に鑑み、メタルの流れによる塗膜仕上がり外観の悪さ、塗料のすい込

ト基とアクリルポリオール樹脂の水溶基の比がNCO基数/OH基数=0.6～1.5の範囲にあるウレタン樹脂形成成分を10～90重量%の濃度で有機溶剤に溶解してなるウレタンクリヤー塗料を塗布し、

該塗料を少なくとも指触乾燥させた後、
補修部全面に2液型ウレタンエナメル塗料を塗り重ね、ついで

乾燥させることを特徴とする、自動車補修塗装方法に関するものである。

本発明に於ては旧塗膜処理及び下地処理をした後、2液型ウレタンエナメル塗料を塗装する前に、冬期等の低温時に於いても乾燥の速いウレタンクリヤー塗料を補修部だけでなく、その周辺にも塗装することにより、前述の如き、優れた補修塗膜が得られる。すなわち速乾性ウレタンクリヤー塗料を補修部周辺にも塗装しているのでペーパーケイズが密がり、かつ低温時に於いても数十分で指触乾燥の状態にある塗膜が得られるので、次の2液型ウレタンエナメル塗料を短時間で塗り重ね出来、

塗装作業性が向上するだけでなく、塗面にゴミやホコリが付着することを防げるという利点がある。

本発明に使用するグレタンクリヤー塗料はアクリルポリオール樹脂、ポリイソシアネート化合物及び有機溶剤を主成分とするものである。

前記アクリルポリオール樹脂は、(a)ステレン、(b)ヒドロキシ基含有アクリル系单量体及び(c)アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、マレイイン酸モノ又はジエステルあるいはフマル酸モノ又はジエステル(但しエステルは炭素数1~4のアルキル基を含有する)から重合開始剤、有機溶剤を用い常法の溶液重合法等により合成された共重合体である。該アクリルポリオール樹脂は数平均分子量が5,000~50,000が適當であり、分子量が低くなると耐候性が悪くなり逆に多くなると塗装作業性が悪くなるのでいずれも好ましくない。

上記アクリルポリオール樹脂の製造に使用する(a)成分は20~45重量%が適當である。20重量%未満であると樹脂の硬さが得られず、また乾燥性が悪くなると樹脂の硬さが得られず、また乾

い。

前記ポリイソシアネート化合物は、ヘキサメチレンジイソシアネート誘導体とイソホロンジイソシアネート誘導体とから構成される。

本発明に於て上記ポリイソシアネート化合物は共にアクリルポリオール樹脂の架橋剤として作用する。ところでヘキサメチレンジイソシアネート誘導体のみを架橋剤として用いたアクリルウレタン樹脂組成物に於ては低温時の硬化速度は速いが指触乾燥が遅いという欠点を持ち、一方イソホロンジイソシアネート誘導体のみを架橋剤として用いたアクリルウレタン樹脂組成物に於ては指触乾燥は速いが硬化速度が遅いという欠点を持つ。ところが両者を後記の如き特定の量比で混合した架橋剤を使用することにより両方の長所のみが組み合わされる。

本発明における上記ヘキサメチレンジイソシアネート誘導体は、ヘキサメチレンジイソシアネートのピューレント結合生成物及びポリオール付加体であり、またイソホロンジイソシアネート誘導

持開昭58-112073(3)
導性、耐水性が悪くなり、一方45重量%を超えると耐候性が悪くなる。

また(b)成分は10~25重量%が適當である。10重量%未満であると樹脂の硬化性が不充分となり、一方25重量%を超えると樹脂の粘度が高くなる。なお、(b)成分としてはアクリル酸-2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸-2-ヒドロキシエチル、アクリル酸ヒドロキシプロピル、メタクリル酸ヒドロキシプロピル、アクリル酸ヒドロキシアツル、メタクリル酸ヒドロキシアツル、N-メチロールアクリルアミド、N-メチロールメタクリルアミド、アリルアルコール等が代表的なものとして例示できる。

また(c)成分は30~55重量%が適當である。30重量%未満であると樹脂が硬くなり物性が低下し、一方55重量%を超えると逆に樹脂が軟くなり塗膜性能、乾燥性が低下する。なお、(c)成分のエスチルは炭素数4以下のアルキル基を含有することが適當で、アルキル基の炭素数が5以上になると周間剥離が生じやすくなるため好ましくない。

体はイソホロンジイソシアネートのポリオール付加体である。

上記ポリオールとしては、エチレングリコール、ブロビレングリコール、1,3-ブチレングリコール、1,6-ヘキサンジオール、ジエチレングリコール、ジブロビレングリコール、ネオペンチルグリコール、トリエチレングリコール、水素化ビスエノールA、ビスエノールジヒドロキシプロピルエーテル等の2価アルコール、グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、等の3価アルコール及びベンタエリトリト、ジベンタエリトリト等の4価アルコールなどが挙げられる。

これらのジイソシアネート誘導体は分子中に2個以上のイソシアネート基を有する化合物の混合物として得られるが、本発明では、混合物のNCO%(ジイソシアネート誘導体混合物100重量部中にしめるNCO基の重量部で表わす)が10~30%のものを使用する。NCO%が10%より少くなければ生成するウレタン結合が少くなり硬度、

耐溶剤性等の充分な被膜が得られない。またNCO多が50%より多いものは導体化されていない。イソシアネートモノマーの含有率が高く、有機溶剤による蒸気を発生するため使用に適さない。

ヘキサメチレンジイソシアネート樹脂とイソホロンジイソシアネート樹脂は重量比で50/50～10/90の範囲で混合する。この範囲よりヘキサメチレンジイソシアネートの量が多くなれば接触乾燥が遅くなり、逆にイソホロンジイソシアネート樹脂の量が多くなれば硬化速度が遅くなる。特に40/60～20～80の範囲が好ましい。

上記ポリイソシアネート化合物とアクリルボリオール樹脂はイソシアネート基数と水酸基数の比がNCO基数/OH基数=0.6～1.5の範囲内で混合する。ポリイソシアネート化合物の量が上記範囲より多くなれば初期乾燥時間が長くなると同時にコストが高くなる。

逆にアクリルボリオール樹脂の量が上記範囲より多くなれば生成するウレタン結合が少なく、充

被と硬化剤であるポリイソシアネート化合物樹脂を混合し、使用する。このようにして得られたウレタンクリヤー塗料を補修部全面及び補修部周辺に、エアースプレー、エアレススプレー、熱電スプレー等の手段により乾燥膜厚約3～50μにならうに塗装する。

ウレタンクリヤー塗料乾膜が少なくとも接触乾燥した後、補修部全面にもしくは補修部全面とその周辺に自動車補修用に通常使用されている2液型ウレタンエナメル塗料を塗り重ねる。

上記2液型ウレタンエナメル塗料はポリオール樹脂、ポリイソシアネート化合物、着色顔料及び又はメタリック粉末、有機溶剤を主成分とするものである。

ポリオール樹脂としては、前述の如きアクリルボリオール樹脂、ポリエステルボリオール樹脂、アクリル酸性ポリエステルボリオール樹脂等が例示出来る。またポリイソシアネート化合物としては非黄変性ポリイソシアネート化合物が適当である。具体的には前述のヘキサメチレンジイソシア

特開昭58-112073(4)
分にウレタン樹脂としての強度等性を発揮しなくなる。

特に上記官能基数の比が0.8～1.2の場合が好ましい。

本発明に於て上記のポリイソシアネート化合物及びアクリルボリオール樹脂を溶解する有機溶剤としては、酢酸エチル、酢酸イソアツル、酢酸アツル等のエスチル系溶剤、エチレングリコールモノエチルエーテルアセテート等のエーテルエスチル系溶剤、キシレン、トルエン等の芳香族系溶剤等が使用出来る。溶液中のポリイソシアネート化合物及びアクリルボリオール樹脂を合せた濃度は10～90重量%とする。

上記濃度が10重量%より少くなれば充分な被膜が得られなくなり、また90重量%より多くなれば高粘度になり塗装作業性が低下する。

上記ウレタンクリヤー塗料には、必要によりレベリング剤、ヘジヤ防止剤、沈殿防止剤等の添加剤を加えてもよい。このウレタンクリヤー塗料は使用直前に主剤であるアクリルボリオール樹脂溶

エート樹脂体、イソホロンジイソシアネート樹脂体等が例示出来、これらは単独でもしくは混合して使用し得る。

硬化剤であるポリイソシアネート化合物のイソシアネート基と主剤であるポリオール樹脂の水酸基の比がNCO基数/OH基数=0.5～1.5の範囲で、硬化剤と主剤を使用直前に混合し使用する。

上記着色顔料としては酸化チタン、カーボンブラック、ベンガラ、黄鉛、鉛丹、群青等が使用出来、これらは樹脂固形分に対し、4～90重量%の範囲が適当である。

またメタリック粉末としてはアルミニウム粉末、鋼粉、鐵粉等が使用出来、これらは樹脂固形分に対し1～60重量%の範囲が適当である。

上記の2液型ウレタンエナメル塗料は、さらに必要に応じ紫外線吸収剤、レベリング剤、ヘジヤ防止剤、沈殿防止剤等の添加剤を加えて、前述の如き有機溶剤に溶解し、塗膜形成成分を20～60重量%としたものである。この2液型ウレタ

ンエナメル歯科は、前述の如き歯科手術により塗装する。

着色歯科を添加した2液型ウレタンエナメル歯科を使用したソリッドカラー仕上げの場合は、補修部分に薄く何回かに分けて塗装し、漸次歯表面積を広げて補修部分と上塗りが欠損していない程度(旧歯膜)の境界を埋めるようにしながら補修部周辺まで塗装し、境界マッキングを行なうのが望ましい。さらに必要に応じ、その上に前記2液型ウレタンエナメル歯科に2液型ウレタンクリヤー歯科を混合した歯科あるいは2液型ウレタンクリヤー歯科を塗り重ねることも出来る。

またメタリック粉末を添加した2液型ウレタンエナメル歯科を使用したメタリック仕上げの場合もソリッドカラー仕上げと同じにして塗装されるが、これを塗装した後ウエット・オン・ウェットで2液型ウレタンクリヤー歯科を塗り重ねるか、あるいは2液型ウレタンクリヤー歯科とメタリック歯科を混合した歯科をウェット・オン・ウェットで塗り重ね、さらに2液型ウレタンクリヤー歯

科をウェット・オン・ウェットで塗り重ねることが望ましい。これら上塗り歯科の乾燥度は10~100μ程度が適当である。

以下本発明を実施例により説明する。なお「即」、「△」は重量基準で示す。

<アクリルポリオール樹脂溶液(4)の製造>

キシレン/酢酸アチル(1:1)混合有機溶剤中でステレン、メタクリル酸-2-ヒドロキシエチル及びアクリル酸アチルの(35:20:45)の割合からなる混合モノマーを常法により溶液重合し、数平均分子量12,000、水酸基価(固形分)100のアクリルポリオール樹脂の50%溶液(4)を調製した。

<アクリルポリオール樹脂溶液(5)の製造>

ステレン、メタクリル酸-2-ヒドロキシエチル及びアクリル酸アチルの(55:20:25)の割合からなる混合モノマーから同様にして数平均分子量3,000、水酸基価(固形分)100のアクリルポリオール樹脂の50%溶液(5)を調製した。

<アクリルポリオール樹脂溶液(6)の製造>

ステレン、アクリル酸ヒドロキシプロピル及びマレイン酸ジアチルの(35:20:45)の割合からなる混合モノマーから同様にして数平均分子量13,000、水酸基価(固形分)100のアクリルポリオール樹脂の50%溶液(6)を調製した。

<アクリルポリオール樹脂溶液(7)の製造>

ステレン、アクリル酸ヒドロキシプロピル及びマレイン酸ジアチルの(35:20:45)の割合からなる混合モノマーから同様にして数平均分子量13,000、水酸基価(固形分)100のアクリルポリオール樹脂の50%溶液(7)を調製した。

<歯科主剤(4)の製造>

アクリルポリオール樹脂溶液[アクリティックA-B01(大日本インキ化学工業社製商品名):数平均分子量16,600、水酸基価(固形分)100、50%キシレン溶液]70部、硬化チタン30部及びレベリング剤0.5部をロールミル

で練合し、歯科主剤(4)を調製した。

<歯科主剤(5)の製造>

アクリルポリオール樹脂溶液[ヒタロイド301B(日立化成工業社製商品名):数平均分子量30,000、水酸基価(固形分)50、50%トルエン/酢酸アチル混合溶液]80部、沈殿防止剤0.5部、ノンリーフィングタイプアルミニウムペースト10部、キシレン5部及び酢酸アチル5部を均一に搅拌混和して歯科主剤(5)を調製した。

<歯科主剤(6)の製造>

アクリルポリオール樹脂溶液[アクリティックA-B51(大日本インキ化学工業社製商品名):水酸基価(溶液分)70、70%酢酸アチル溶液]75部、キシレン12.5部及び酢酸アチル12.5部を均一に搅拌混和して歯科主剤(6)を調製した。

<歯科(7)の製造>

アクリル樹脂溶液[アクリティックA-135(大日本インキ化学工業社製商品名)]7.8.3部、1/4秒ニトロセルロース(30%インプロピルアルコールクエット)16.1部、フタル酸

特開昭58-112073(6)

ジアミン5、6部を均一に複合混合してクリヤーラフカーセメントを調製した。

<ポリイソシアネート化合物溶液(1)の製造>

ヘキサメチレンジイソシアネート誘導体(NCO % 16.7)の75%酢酸エチル溶液[バーノン・クDN950(大日本インキ化学工業社製商品名)、トリメチロールプロピオンを主体とするポリオール付加体]79部をトルエン11部及び酢酸エチル10部と混合しポリイソシアネート溶液(1)を調製した。

<ポリイソシアネート化合物溶液(2)>

イソホロングイソシアネート誘導体(NCO % 15.4)の67%エチレンクリコールモノエチルエーテルアセテート/キシレン(等量混合物)溶液[ディスモジュールL2267(マイエル社製商品名)、トリメチロールプロピオンを主体とするポリオール付加体]

エーテルアルセナート1.5部よりなる混合溶液で粘度(イワタカグリフ2)

調整したもの。

表-2 ウレタンエナメル塗料

塗料成分	7	8	9
塗料主剤	A B C	85 78 78	
ポリイソシアネート化合物溶液1 粘度(2)	1.7 1.7	2.2 2.2	2.2
粘度(2)	12秒 12秒	12秒 12秒	12秒 12秒

注2) 表-1の柱(1)と同様の混合溶液で粘度調整したもの。

表-1 ウレタンクリヤー塗料

塗料成分	1	2	3	4	5	6
アクリルポリマー 樹脂溶液	74.4 74.4 74.4			78.0 78.0 78.0		
ポリイソシアネート化合物 溶液	10.7 10.7 10.7			5.1 5.1 5.1	22.0 22.0 22.0	
溶剂	14.9 14.9 14.9			20.3 20.3 20.3	25.0 25.0 25.0	
触媒	0 0 0					100 100 100
粘度(注1)	11秒 11秒 11秒			11秒 11秒 11秒	11秒 11秒 11秒	11秒 11秒 11秒

注1) キシレン50部、酢酸アカル55部、エチレングリコールセノエカル

実施例及び比較例

自動車ドアパネルの損傷部及びその周辺を通常行なわれている方法にて素地調整、ボリバテ付け、プライマーサーフェサー塗装、+280サンドペーパーで研磨した表面に、表-1に示す塗料を、損傷部及びその周辺に乾燥度厚約1.5μになるようエースプレー塗装し、20分(20℃)後、表-2の塗料A7、Bをエースプレー塗装した。なお、塗料A7及びB8の乾燥度厚はそれぞれ3.0μ、1.5μになるよう塗装した。なお、塗料B8を使用したものは、ウエットオンウエットで塗料A7を乾燥度厚約3.0μになるよう塗り重ねた。

以上の塗装系及び塗膜性評結果を表-3に示す。

第一三 機械及材料特性研究

実験例		比較例					
		1	2	3	4	5	6
被 検 系 統	クリヤー下部顎骨	歯科疾1	歯科疾2	歯科疾3	歯科疾4	歯科疾5	歯科疾6
	上部顎骨	歯科疾7	歯科疾8	歯科疾9	歯科疾10	歯科疾11	歯科疾12
被 検 状 態	乾燥(保存3)	○	○	○	△	×	○
	湿潤(保存4)	○	○	○	△(メタル アガ)	△(メタル アガ)	△(金属性 アガ)
被 検 性 能	60°光沢鏡	92	90	93	92	90	75
	研磨鏡(保存5)	異常なし	異常なし	異常なし	異常なし	異常なし	異常なし

注3) ドリヤー下部断面を横し、20分後(20℃)、指圧で強く押え、指紋の残り具合を判定

上部骨格を構成し、乾燥後のアルミタ、光沢、チアミ等の金属外観を

目次判定

1

尚實中 ◎：非常良好
○：良好
△：中等不良
×：不良

表一から明らかに如く、ヘキサメチレンジイソシアネート誘導体のみをアクリルポリオール樹脂の硬化剤として使用した比較例1では乾燥性、全面状態が劣り、更にステレン分が多いアクリルポリオール樹脂を使用した比較例2では乾燥性、全面状態、耐候性が劣り、従来のアクリルラフカーペット下塗料として使用した比較例3では全面状態、耐候性、光沢が劣り、下塗料を使用しない比較例4では全面状態、光沢が劣るものであつたが、本発明の実施例1～3では、これらの諸特性が一段と優れたものであつた。